

(19)日本国特許庁 (J P)

(12) 公 開 特 許 公 報 (A)

(11)特許出願公開番号

特開平8-143776

(43)公開日 平成8年(1996)6月4日

(51)Int.Cl. ⁶	識別記号	庁内整理番号	F I	技術表示箇所
C 0 8 L 83/06	L R Z			
C 0 8 K 3/36	L R X			
// (C 0 8 L 83/06 83: 04)				

審査請求 未請求 請求項の数 8 F D (全 5 頁)

(21)出願番号 特願平6-312389

(22)出願日 平成6年(1994)11月24日

(71)出願人 000131223

株式会社シーゲル

東京都港区高輪2丁目18番6号

(72)発明者 稲垣 裕之

静岡県静岡市池田820-1 ロベリア203

(72)発明者 越部 茂

神奈川県横浜市港北区富士塚2-28-22

(74)代理人 弁理士 松井 光夫

(54)【発明の名称】 シリコーンゲル組成物

(57)【要約】

【目的】 均一に光を散乱し、従って導光体例えば液晶パネル用導光板、光ファイバーケーブル連結部等に使用し得る耐候性及び耐衝撃性に優れたシリコーンゲル組成物を提供する。

【構成】 シリコーンゲルより高い屈折率を持つシリカ粒子又はシリコーンゴム粒子を含有してなるシリコーンゲル組成物。

【特許請求の範囲】

【請求項1】 シリコーンゲルより高い屈折率を持つシリカ粒子又はシリコーンゴム粒子を含有してなるシリコーンゲル組成物。

【請求項2】 シリカ粒子及びシリコーンゴム粒子が、シリコーンゲルの屈折率より0.02以上高い屈折率を持つ請求項1記載のシリコーンゲル組成物。

【請求項3】 シリカ粒子及びシリコーンゴム粒子が、実質的に球状である請求項1又は2記載のシリコーンゲル組成物。

【請求項4】 シリコーンゲル100重量部に対して、シリカ粒子又はシリコーンゴム粒子を0.1~100重量部含む請求項1~3のいずれか一つに記載のシリコーンゲル組成物。

【請求項5】 シリコーンゴム粒子が、フェニル基含有シリコーンゴムである請求項1~4のいずれか一つに記載のシリコーンゲル組成物。

【請求項6】 シリカ粒子又はシリコーンゴム粒子がシランカップリング剤で処理されたものである請求項1~5のいずれか一つに記載のシリコーンゲル組成物。

【請求項7】 テトラアルコキシシランを水中で加水分解してシリカ粒子の懸濁液を形成せしめ、別途、式 $R_2Si(OR')_2$ で示される化合物と式 $RSi(OR'')_3$ で示される化合物とからシリコーンゲルを形成して、次いで両者を混合し、反応させる請求項1~4のいずれか一つに記載のシリコーンゲル組成物の製造法（ここで、Rは夫々独立して炭素数1~5個のアルキル基又はフェニル基（アルキル基で置換されていてもよい）を示し、該アルキル基及びフェニル基はその水素原子がフッ素原子により置換されていてもよく、R'は夫々独立して炭素数1~20個のアルキル基又は水素原子を示す）。

【請求項8】 テトラアルコキシシランを水中で加水分解してシリカ粒子の懸濁液を形成せしめ、次いで該懸濁液中に式 $R_2Si(OR')_2$ で示される化合物及び式 $RSi(OR'')_3$ で示される化合物を混合してシリコーンゲルを形成する請求項1~4のいずれか一つに記載のシリコーンゲル組成物の製造法（ここで、Rは夫々独立して炭素数1~5個のアルキル基又はフェニル基（アルキル基で置換されていてもよい）を示し、該アルキル基及びフェニル基はその水素原子がフッ素原子により置換されていてもよく、R'は夫々独立して炭素数1~20個のアルキル基又は水素原子を示す）。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【産業上の利用分野】 本発明はシリコーンゲル組成物に関し、更に詳しくは導光体、例えば液晶パネル用導光板、光ファイバーケーブル連結部等を使用し得るシリコーンゲル組成物に関する。

【0002】

【従来の技術】 従来から、シリコーンを光伝送体、例えば光ファイバーとして使用することが知られている。しかし、石英系光ファイバーあるいはポリメチルメタクリレート、ポリカーボネート等のプラスチック系光ファイバーと比較して、シリコーン光ファイバーは光伝送損失が大きいという欠点を有している。従って、光ファイバーのような長距離の光伝送用には使用できず、専ら光伝送距離が数10cm程度と短いもの、例えば液晶パネル用導光板、光ファイバーケーブル連結部等への利用が考えられた。そこでは、光が均一に散乱されることが必要であるが、未だ十分な製品が得られていない。

【0003】

【発明が解決しようとする課題】 本発明は、均一に光を散乱し、従って導光体例えば液晶パネル用導光板（バックライト）、光ファイバーケーブル連結部等を使用し得る、耐候性及び耐衝撃性に優れたシリコーンゲル組成物を提供するものである。

【0004】

【課題を解決するための手段】 本発明は、シリコーンゲルより高い屈折率を持つシリカ粒子又はシリコーンゴム粒子を含有してなるシリコーンゲル組成物である。

【0005】 本発明において使用されるシリカ粒子及びシリコーンゴム粒子は、シリコーンゲルより高い屈折率を持つ。好ましくはシリコーンゲルの屈折率より0.02以上、より好ましくは0.05以上高い屈折率を持つ。該屈折率差が0.02未満では、液晶パネル用導光板、光ファイバーケーブル連結部等を使用した際、十分に均一な光散乱が得られない。

【0006】 該シリカ粒子及びシリコーンゴム粒子は、実質的に球状であることが好ましい。ここで実質的に球状とは、必ずしも該粒子の形状が真球である必要はなく、多少楕円形の球状体が含まれていてもよいことをいう。これにより、より均一な光散乱が得られる。該粒子の平均粒径は、好ましくは0.1~100 μm 、特に好ましくは0.2~50 μm である。ここで、平均粒径はレーザー回折法による寸法で表示する(D_{50})。平均粒径が上記範囲未満では、該粒子の製造コストが増加し、上記範囲を越えては、光散乱の均一性が劣る。また、該粒子は、粒度分布において好ましくは粒径が80 μm 以下の粒子が90重量%以上であり、特に好ましくは粒径が70 μm 以下の粒子が95重量%以上がよい。

【0007】 シリカ粒子及びシリコーンゴム粒子は、上記性状を有するものであれば、特に制限はなく、従来公知のものを使用することができる。

【0008】 シリカ粒子としては、例えば、高純度天然石英粉末又は高純度合成シリカ粉末を酸素-プロパン、酸素-水素等により火炎溶解する方法により製造したもの、あるいはゾル・ゲル法等により製造したものを使用することができる。市販のものとして、例えば電気化学工業株式会社製FB-48（球状シリカ、屈折率1.4

6)、FB-74、FB-60、FB-35、FB-30、FB-01、あるいは株式会社龍森製1-FX、アドマファイン等が挙げられる。

【0009】シリコーンゴム粒子としては、例えば、フェニルメチルシリコーンゴム、メチルフェニルビニルシリコーンゴム、ジフェニルシリコーンゴム等を使用することができる。これらのうちフェニル基含有シリコーンゴムがより大きな屈折率を有し、従ってより均一な光散乱を達成することができるため、より好ましく使用される。市販のフェニル基含有シリコーンゴムとしては、例えば、東レ・ダウコーニング・シリコーン株式会社製E-603(フェニルメチルシリコーンゴム、屈折率1.53)、信越化学工業株式会社製KMP 590等が挙げられる。

【0010】また、本発明において使用されるシリコーンゲル自体も公知である。例えば、ポリジメチルシロキサンゲル、ポリメチルトリフルオロプロピルシロキサンゲル、ポリフェニルメチルシロキサンゲル等を使用することができる。該シリコーンゲルの屈折率は、好ましくは1.30~1.50、特に好ましくは1.35~1.45である。シリコーンゲルの屈折率は、フェニル基の含有量を変化させることにより調節することができ、また、フッ素置換することにより屈折率を低下させることができる。従って、シリコーンゲルの屈折率を上記範囲に選ぶことができ、前記屈折率差を有するシリコーンゲル組成物が得られる。該シリコーンゲルとしては市販のものを使用することができる。例えば、東レ・ダウコーニング・シリコーン株式会社製CF-5107(ポリジメチルシロキサンゲル、屈折率1.41)、CF-5106、あるいは信越化学工業株式会社製KE-1051、KE-1052等が挙げられる。

【0011】本発明のシリコーンゲル組成物において、上記のシリコーンゲルとシリカ粒子又はシリコーンゴム粒子との配合比は、シリコーンゲル100重量部に対してシリカ粒子又はシリコーンゴム粒子が好ましくは0.1~100重量部、特に好ましくは1~50重量部である。上記範囲未満では、液晶パネル用導光板、光ファイバーケーブル連結部等に使用した際、均一な光散乱が得られない。上記範囲を越えては、十分な機械的特性の成形品を得ることが困難である。

【0012】好ましくは、シリカ粒子又はシリコーンゴム粒子がシランカップリング剤、チタンカップリング剤、ジルコニウムカップリング剤等で処理されたものである。これにより、シリコーンゲルとシリカ粒子又はシリコーンゴム粒子との密着性を高めることができ、より均一な光散乱が得られるため好ましい。該カップリング剤は、シリカ粒子又はシリコーンゴム粒子100重量部に対して、好ましくは0.1~10重量部、特に好ましくは0.2~7重量部含まれる。上記範囲未満では密着性を十分に高めることができず、上記範囲を越えても

著しい効果の増加は認められずコスト増につながるため好ましくない。該シランカップリング剤としては、例えばγ-グリシドキシプロピルトリメトキシシラン、γ-グリシドキシプロピルメチルジメトキシシラン、γ-グリシドキシプロピルメチルジエトキシシラン、β-(3,4-エポキシシクロヘキシル)エチルトリメトキシシラン; γ-アミノプロピルトリエトキシシラン、N-β(アミノエチル)γ-アミノプロピルトリメトキシシラン、N-β(アミノエチル)γ-アミノプロピルトリエトキシシラン、N-β(アミノエチル)γ-アミノプロピルメチルジメトキシシラン、N-β(アミノエチル)γ-アミノイソブチルメチルジメトキシシラン、N-フェニル-γ-アミノプロピルトリメトキシシラン; γ-メルカプトプロピルトリメトキシシラン、γ-メルカプトプロピルメチルジメトキシシラン; ビニルトリメトキシシラン、ビニルトリエトキシシラン、ビニルトリス(β-メトキシエトキシ)シラン; 及びγ-メタクリロキシプロピルトリメトキシシラン、γ-メタクリロキシプロピルメチルジメトキシシラン等を用いることができる。カップリング剤による処理は、予めシリカ粒子又はシリコーンゴム粒子に所定量のカップリング剤を加えることにより実施されることができる。カップリング剤の添加は、例えばシリカ粒子又はシリコーンゴム粒子へのカップリング剤水溶液のスプレーにより、あるいはシリカ粒子又はシリコーンゴム粒子の水スラリー中にカップリング剤を加えることにより行うことができる。また、シリカ粒子又はシリコーンゴム粒子、カップリング剤及びシリコーンゲルを一緒に混合して処理することもできる。

【0013】上記シリコーンゲル組成物の調製は、以上述べた成分を、例えばニーダー、ロール、ミキサー等により混練することにより行うことができる。次に、加熱あるいは紫外線照射等により、該シリコーンゲル組成物を硬化して成形することができる。

【0014】本発明のシリコーンゲル組成物は、テトラアルコキシシランを水中で加水分解してシリカ粒子の懸濁液を形成せしめ、別途、式 $R_2Si(OR')_2$ で示される化合物と式 $RSi(OR')_3$ で示される化合物とからシリコーンゲルを形成して、次いで両者を混合し、反応させることにより製造することができる。

【0015】また、上記シリカ粒子の懸濁液中に式 $R_2Si(OR')_2$ で示される化合物及び式 $RSi(OR')_3$ で示される化合物を混合してシリコーンゲルを形成することにより製造することもできる。

【0016】上記の各方法を使用することにより、シリカに残存するシラノール基とシリコーンゲルのシラノール基とが結合して、シリカとシリコーンゲルの密着性がより高いシリコーンゲル組成物を製造することができる。従って、より均一な光散乱が得られる。

【0017】まず、シリカの製造に使用されるテトラア

ルコキシシランとしては、好ましくは炭素数1~20個のアルコキシ基を持つものが挙げられる。特に好ましくはテトラメトキシシラン、テトラエトキシシラン等の低級アルコキシシラン又はそのオリゴマーが使用される。

【0018】テトラアルコキシシランの加水分解に当たって、必要に応じてアルコール類やエーテル類等の有機溶媒を混合することができる。アルコール類としては、例えばメタノール、エタノール、イソプロパノール、n-ブタノール、t-ブタノール、ペンタノール、エチレングリコール、プロピレングリコール、1,4-ブタンジオール等が挙げられる。エーテル類としては、例えばジメチルエーテル、ジエチルエーテル、メチルエチルエーテル等が挙げられる。

【0019】また、触媒として塩酸、酢酸のような酸やアンモニアのようなアルカリを使用することもできる。

【0020】テトラアルコキシシランの加水分解は公知であり、例えば特開平3-275527号、特公平1-59975号、特開平1-239015号公報等に記載されている。例えば、テトラアルコキシシラン1モルに対して好ましくは4~20モルの水、好ましくは0.001~0.1モルの塩酸又は酢酸、及び好ましくは4~20モルのエタノールを加えて、好ましくは室温でよく混合しテトラアルコキシシランが加水分解され重合物が成長するまで、好ましくは2~48時間攪拌混合することにより実施される。この様にして、シリカ粒子の懸濁液を形成することができる。

【0021】次に、シリコーンゲルの製造に使用される式 $R_2Si(OR^1)_2$ で示される化合物と式 $RSi(OR^1)_3$ で示される化合物において、Rは夫々独立して、炭素数1~5個のアルキル基好ましくはメチル基、エチル基、プロピル基、又はフェニル基(アルキル基で置換されていてもよい)を示す。該アルキル基及びフェニル基はその水素原子がフッ素原子により置換されていてもよい。R¹は夫々独立して、炭素数1~20個のアルキル基好ましくはメチル基、エチル基、プロピル基、又は水素原子を示す。式 $R_2Si(OR^1)_2$ で示される化合物としては、好ましくはジメチルジエトキシシラン、ジメチルジメトキシシラン等が使用され、式 $RSi(OR^1)_3$ で示される化合物としては、好ましくはモノメチルトリエトキシシラン、モノメチルトリメトキシシラン等が使用される。ここで、 $R_2Si(OR^1)_2$ に対する $RSi(OR^1)_3$ のモル比は、好ましくは1より小さく、特に好ましくは0.01~0.5である。上記化合物から得られたシリコーンゲルは、可とう性及び強度のバランスが優れている。シリコーンゲルの屈折率は、フェニル基及びフッ素原子の含有量を変化させることにより調節することができる。従って、上記化合物の種類を適宜選択することにより、所望の屈折率を持つシリコーンゲルを得ることができる。

【0022】シリコーンゲルの製造法は公知であり、好

ましくは水中で上記化合物を加水分解、縮合して製造することができる。この際、必要に応じて、上記と同じアルコール類やエーテル類等の有機溶媒、及び触媒として塩酸、酢酸のような酸やアンモニアのようなアルカリを使用することもできる。例えばジメチルジアルコキシシランとモノメチルトリアルコキシシランを上記モル比で混合し、更にジメチルジアルコキシシラン1モルに対して好ましくは、4~20モルの水及び4~20モルのエタノールを加えて、好ましくは室温で2~48時間攪拌することによって行われる。得られた生成物を、好ましくは室温~80℃で濃縮してもよい。

【0023】次に、上記のようにして製造したシリカ粒子の懸濁液とシリコーンゲルとを混合し、反応して本発明のシリコーンゲル組成物を製造する。例えば、シリカ粒子とシリコーンゲルが所定の割合となるように上記両者を混合し、攪拌しながら、好ましくは室温~200℃、特に好ましくは60~100℃の温度で反応することにより製造することができる。反応後、好ましくは60~200℃の温度及び好ましくは0.1~200mmHgの減圧下で濃縮することができる。

【0024】シリカ粒子の懸濁液中で前記化合物からシリコーンゲルを形成し、シリコーンゲル組成物を製造する場合にも、上記と同じ条件下で行うことができる。

【0025】本発明のシリコーンゲル組成物は、例えば液晶パネル用導光板、光ファイバーケーブル連結部等の導光体として極めて有用である。

【0026】以下、実施例、比較例により本発明を更に詳しく説明するが、本発明はこれらの実施例に限定されるものではない。

【0027】

【実施例】本発明で使用した各物質は下記の通りである。

<シリコーンゲル>ポリジメチルシロキサゲル(CF-5107、商標、東レ・ダウコーニング・シリコーン株式会社製)、屈折率1.41

<シリカ>球状シリカ(FB-48、電気化学工業株式会社製)、屈折率1.46、平均粒径17μm

<シリコーンゴム>球状ポリフェニルメチルシロキサン(E-603、商標、東レ・ダウコーニング・シリコーン株式会社製)、屈折率1.53、平均粒径5μm

<シランカップリング剤>ビニルトリメトキシシラン(KBM-1003、商標、信越化学工業株式会社製)

【0028】

【実施例1】上記球状シリカを上記シリコーンゲルに添加し、室温でミキサーにて混合して球状シリカを2重量%含むシリコーンゲル組成物を調製した。次いで、該組成物を所定形状の型に流し込み80℃にて硬化して、縦80mm×横120mm×厚さ4mmの導光板を作成し、輝度測定に供した。輝度測定は、ランプ電流5mA、光源輝度30,000cd/m²、ランプ長88m

m、ランプ径2.6mmの光源を導光板の短辺から2mm離して平行に設置して光をあて、ミノルタカメラ株式会社製の輝度計LS-100を用いて光源から100mm離れた点において実施した。輝度は、 $1,740\text{cd}/\text{m}^2$ であった。

【0029】

【比較例1】シリコーンゲルのみにより、実施例1と同一にして導光板を作成し輝度測定を実施した。輝度は、 $1,230\text{cd}/\text{m}^2$ であった。

【0030】

【実施例2】球状シリカに代えて上記シリコーンゴムを使用した以外は、実施例1と同一にして実施した。輝度は、 $1,690\text{cd}/\text{m}^2$ であった。

【0031】

【実施例3】上記の球状シリカ50重量部を水1,000重量部に分散してスラリー化した後、上記シランカップリング剤0.5重量部を攪拌しながら添加した。その後、脱水し、 110°C で2時間乾燥を行った。該表面処理後の球状シリカを上記シリコーンゲルに添加し、室温でミキサーにて混合して球状シリカを2重量%含むシリコーンゲル組成物を調製した。次いで、実施例1と同一にして輝度測定を実施した。輝度は、 $1,860\text{cd}/\text{m}^2$ であった。

【0032】

【実施例4】上記のシリコーンゴムを実施例3と同一にしてシランカップリング剤で表面処理し、これを用いてシリコーンゴムを2重量%含むシリコーンゲル組成物を調製した。次いで、実施例1と同一にして輝度測定を実施した。輝度は、 $1,810\text{cd}/\text{m}^2$ であった。

【0033】

【実施例5】正ケイ酸エチル7グラムにエタノール30グラムを加えて均一に混合した。これに、水28グラム及び酢酸0.02グラムを加えて、室温で24時間攪拌して、均一なシリカ粒子の懸濁液を得た。該シリカの屈折率は1.46であった。

【0034】別途、ジメチルジエトキシシラン180グラム及びモノメチルトリエトキシシラン24グラムをエタノール1000グラムに溶解し、更に水800グラムを加えて室温で24時間攪拌した。次に、 60°C で蒸発乾燥を行い、濃縮混合物800グラムを得た。

【0035】次いで、該濃縮混合物と上記で得られたシリカ粒子の懸濁液とを混合し、該混合液を攪拌しながら 60°C にて反応を行った。混合液の粘度が上昇し始めた時点で攪拌を止め、該混合液を型に流し込んだ後、 200°C の加熱下で1mmHgまで減圧して軽質分を除去し、実施例1と同一寸法の導光板を成形した。シリコーンゲル組成物は球状シリカ2重量%を含んでいた。シリコーンゲル部の屈折率は1.41であった。ここでシリコーンゲル部の屈折率は、上記で得られたシリコーンゲルを含む濃縮混合物にシリカ粒子の懸濁液を混合せずして、該濃縮混合物を上記と同じ条件下で反応させて製造したものから測定することができる。

【0036】次いで、実施例1と同一にして輝度測定を実施した。輝度は、 $1,950\text{cd}/\text{m}^2$ であった。

【0037】実施例1～5は、シリコーンゲルのみを使用した比較例1に比べて、いずれもその輝度は著しく良好であった。実施例2の屈折率差は実施例1より大きい。輝度は多少低くなっている。これはシリコーンゲルとシリコーンゴム粒子の界面接着性が、実施例1に比べて多少劣るためと考えられるが、本発明の効果を十分に達成し得るものであった。実施例3及び4は、夫々シランカップリング剤による処理を施したシリカ粒子及びシリコーンゴム粒子を使用したものである。夫々、実施例1及び2に比べて、いずれも輝度は増加し、シランカップリング剤処理により輝度を高め得ることが分かった。実施例5は、ゾル・ゲル法により、シリカ懸濁液とシリコーンゲルとを混合、反応させることによりシリコーンゲル組成物を製造したものである。該方法を使用すると、更に輝度を増加させ得ることが分かった。このように、本発明のシリコーンゲル組成物は、端部にのみ光を照射しただけでも組成物全体が均一に光散乱することが分かった。

【0038】

【発明の効果】本発明は、均一に光を散乱し、従って導光体例えば液晶パネル用導光板、光ファイバーケーブル連結部等に使用し得る耐候性及び耐衝撃性に優れたシリコーンゲル組成物を提供する。該シリコーンゲル組成物は、耐候性に優れる故に長期間の使用に耐えることができ、更には衝撃緩衝効果を有する。